

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2005 年 9 月 9 日 (09.09.2005)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2005/083720 A1

- (51) 国際特許分類: H01B 1/22, H01G 4/12, 4/30 (74) 代理人: 大石 皓一 (OISHI, Koichi); 〒1010063 東京都千代田区神田淡路町一丁目 4 番 1 号 友泉淡路町ビル 8 階 Tokyo (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2005/002882
- (22) 国際出願日: 2005 年 2 月 23 日 (23.02.2005) (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ: 特願2004-054723 2004 年 2 月 27 日 (27.02.2004) JP (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): TDK 株式会社 (TDK CORPORATION) [JP/JP]; 〒1038272 東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 佐藤 茂樹 (SATO, Shigeki) [JP/JP]; 〒1038272 東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 TDK 株式会社内 Tokyo (JP). 野村 武史 (NOMURA, Takeshi) [JP/JP]; 〒1038272 東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 TDK 株式会社内 Tokyo (JP).
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告書

[続葉有]

(54) Title: CONDUCTIVE PASTE FOR MULTILAYER CERAMIC ELECTRONIC COMPONENT AND METHOD FOR PRODUCING MULTILAYER UNIT FOR MULTILAYER CERAMIC ELECTRONIC COMPONENT

(54) 発明の名称: 積層セラミック電子部品用の導電体ペーストおよび積層セラミック電子部品用の積層体ユニットの製造方法

(57) Abstract: Disclosed are a conductive paste for multilayer ceramic electronic components and a method for producing a multilayer unit. Specifically disclosed is a conductive paste with good printability which is prepared to include a binder containing an ethyl cellulose having a weight-average molecular weight ( $MW_L$ ) and another ethyl cellulose having a weight-average molecular weight ( $MW_H$ ) at a weight ratio of  $X:(1-X)$  (in this connection,  $MW_L$ ,  $MW_H$  and  $X$  satisfy  $X * MW_L + (1-X) * MW_H = 145,000-215,000$ ), and at least one solvent selected from the group consisting of isobornyl acetate, dihydroterpinyl methyl ether, terpinyl methyl ether,  $\alpha$ -terpinyl acetate, I-dihydrocarvyl acetate, I-menthone, I-menthyl acetate, I-perillyl acetate and I-carvyl acetate.

(57) 要約:

本発明は、積層セラミック電子部品用の導電体ペースト及び積層体ユニットの製造方法に関し、印刷性のよい導電体ペーストを得るために、重量平均分子量  $MW_L$  のエチルセルロースと、重量平均分子量  $MW_H$  のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$  の重量比で含むバインダ ( $MW_L$ 、 $MW_H$ 、 $X$  は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H = 14.5万 \sim 21.5万$ ) と、イソボルニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテート及びI-カルビルアセテートから選ばれる少なくとも一種の溶剤を含む導電体ペーストを調製する。

WO 2005/083720 A1



---

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

## 明 細 書

### 積層セラミック電子部品用の導電体ペーストおよび積層セラミック電子部品用の積層体ユニットの製造方法

#### 技術分野

- [0001] 本発明は、積層セラミック電子部品用の導電体ペーストおよび積層セラミック電子部品用の積層体ユニットの製造方法に関するものであり、さらに詳細には、電極層に隣接する層に含まれているバインダを溶解することがなく、積層セラミック電子部品に、ショート不良が発生することを確実に防止することができる導電体ペーストおよび積層セラミック電子部品に、ショート不良が発生することを確実に防止することができる積層セラミック電子部品用の積層体ユニットの製造方法に関するものである。

#### 背景技術

- [0002] 近年、各種電子機器の小型化にともなって、電子機器に実装される電子部品の小型化および高性能化が要求されるようになっており、積層セラミックコンデンサなどの積層セラミック電子部品においても、積層数の増加、積層単位の薄層化が強く要求されている。
- [0003] 積層セラミックコンデンサによって代表される積層セラミック電子部品を製造するには、まず、セラミック粉末と、アクリル樹脂、ブチラル樹脂などのバインダと、フタル酸エステル類、グリコール類、アジピン酸、リン酸エステル類などの可塑剤と、トルエン、メチルエチルケトン、アセトンなどの有機溶媒を混合分散して、セラミックグリーンシート用の誘電体ペーストを調製する。
- [0004] 次に、誘電体ペーストを、エクストルージョンコーターやグラビアコーターなどを用いて、ポリエチレンテレフタレート(PET)やポリプロピレン(PP)などによって形成された支持シート上に、塗布し、加熱して、塗膜を乾燥させ、セラミックグリーンシートを製作する。
- [0005] さらに、ニッケルなどの導電体粉末とバインダを、ターピネオールなどの溶剤に溶解して、導電体ペーストを調製し、セラミックグリーンシート上に、導電体ペーストを、スクリーン印刷機などによって、所定のパターンで、印刷し、乾燥させて、電極層を形成

する。

- [0006] 電極層が形成されると、電極層が形成されたセラミックグリーンシートを支持シートから剥離して、セラミックグリーンシートと電極層を含む積層体ユニットを形成し、所望の数の積層体ユニットを積層して、加圧し、得られた積層体を、チップ状に切断して、グリーンチップを作製する。
- [0007] 最後に、グリーンチップからバインダを除去して、グリーンチップを焼成し、外部電極を形成することによって、積層セラミックコンデンサなどの積層セラミック電子部品が製造される。
- [0008] 電子部品の小型化および高性能化の要請によって、現在では、積層セラミックコンデンサの層間厚さを決定するセラミックグリーンシートの厚さを $3\mu\text{m}$ あるいは $2\mu\text{m}$ 以下にすることが要求され、300以上のセラミックグリーンシートと電極層を含む積層体ユニットを積層することが要求されている。

## 発明の開示

### 発明が解決しようとする課題

- [0009] しかしながら、セラミックグリーンシート用のバインダとして、広く用いられているブチラール樹脂を用いたセラミックグリーンシート上に、導電体ペースト用の溶剤として、最も一般的に用いられているターピネオールを用いて、調製された電極層用の導電体ペーストを印刷して、電極層を形成する場合には、導電体ペースト中のターピネオールによって、セラミックグリーンシートのバインダが溶解され、セラミックグリーンシートが膨潤し、あるいは、部分的に溶解して、セラミックグリーンシートにピンホールやクラックが発生し、ショート不良の原因になるという問題があった。
- [0010] かかる問題を解決するため、導電体ペーストの溶剤として、クロシン、デカンなどの炭素水素系溶剤を用いることが提案されているが、クロシン、デカンなどの炭素水素系溶剤は、導電体ペーストに用いられるバインダ成分も溶解しないため、従来用いられているターピネオールなどの溶剤を、クロシン、デカンなどの炭素水素系溶剤によって完全に置換することができず、したがって、導電体ペースト中の溶剤が、依然として、セラミックグリーンシートのバインダであるブチラール樹脂に対して、ある程度の溶解性を有しているため、セラミックグリーンシートの厚さがきわめて薄い場合には、セラ

ミックグリーンシートにピンホールやクラックが発生することを防止することが困難であり、また、ケロシン、デカンなどの炭素水素系溶剤は、ターピネオールに比して、粘度が低いため、導電体ペーストの粘度制御が困難になるという問題もあった。

[0011] また、特開平5-325633公報、特開平7-21833号公報および特開平7-21832号公報などは、ターピネオールに代えて、ジヒドロターピネオールなどの水素添加ターピネオールや、ジヒドロターピネオールアセテートなどのテルペン系溶剤を用いた導電体ペーストを提案しているが、ジヒドロターピネオールなどの水素添加ターピネオールや、ジヒドロターピネオールアセテートなどのテルペン系溶剤は、依然として、セラミックグリーンシートのバインダであるブチラール樹脂に対して、ある程度の溶解性を有しているため、セラミックグリーンシートの厚さがきわめて薄い場合には、セラミックグリーンシートにピンホールやクラックが発生することを防止することが困難であるという問題があった。

[0012] さらに、特開2002-270456号公報は、ブチラール系樹脂をバインダとして含むセラミックグリーンシート上に、ブチラール系樹脂をほとんど溶解しないイソボニルアセテートを、溶剤として含む導電体ペーストを、印刷して、電極層を形成した積層セラミック電子部品を開示し、導電体ペーストのバインダとして、エチルセルロースを用いることが好ましい旨を開示しているが、バインダとして、エチルセルロースを含み、溶剤として、イソボニルアセテートを導電体ペーストは、その粘度が低く、流動性が高いため、セラミックグリーンシート上に、導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、印刷する際に、スクリーン製版上から、導電体ペーストが染み出し、所望のように、電極層を印刷することができないという問題があり、また、印刷した電極層のパターンがにじみやすいという問題があった。

[0013] したがって、本発明は、電極層に隣接する層に含まれているバインダを溶解することがなく、積層セラミック電子部品に、ショート不良が発生することを確実に防止することができ、しかも、印刷性に優れた導電体ペーストを提供することを目的とするものである。

[0014] 本発明の別の目的は、積層セラミック電子部品に、ショート不良が発生することを確実に防止することができ、所望のように、電極層を形成することができる積層セラミック

電子部品用の積層体ユニットの製造方法を提供することにある。

## 課題を解決するための手段

[0015] 本発明者は、本発明のかかる目的を達成するため、鋭意研究を重ねた結果、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$ の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$ および $X$ は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$ が14.5万ないし21.5万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を用いて、導電体ペーストを調製した場合には、印刷に適した粘度を有する導電体ペーストを調製することができるだけでなく、所望のように、導電体ペーストのバインダを溶剤に溶解させることができ、バインダとして、ブチラール系樹脂を含むセラミックグリーンシート上に、導電体ペーストを印刷して、電極層を形成しても、導電体ペースト中に含まれた溶剤によって、セラミックグリーンシートに含まれているバインダが溶解されることがなく、したがって、セラミックグリーンシートの厚さがきわめて薄い場合においても、セラミックグリーンシートにピンホールやクラックが発生することを確実に防止し得ることを見出した。

[0016] 本発明はかかる知見に基づくものであり、したがって、本発明の前記目的は、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$ の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$ および $X$ は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$ が14.5万ないし21.5万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含むことを特徴とする導電体ペーストによって達成される。

[0017] 本発明の前記目的はまた、バインダとして、ブチラール系樹脂を含むセラミックグリーンシート上に、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$ の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$

$W_H$  および  $X$  は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  が 14.5 万ないし 21.5 万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含む導電体ペーストを、所定のパターンで、印刷して、電極層を形成することを特徴とする積層セラミック電子部品用の積層体ユニットの製造方法によって達成される。

- [0018] 本発明によれば、印刷に適した粘度を有する導電体ペーストを調製することができ、所望のように、電極層を形成することが可能になるだけでなく、バインダとして、ブチラール系樹脂を含むきわめて薄いセラミックグリーンシート上に、導電体ペーストを印刷して、電極層を形成する場合においても、導電体ペースト中に含まれた溶剤によって、セラミックグリーンシートに含まれているバインダが溶解されることがないから、セラミックグリーンシートが膨潤し、あるいは、部分的に溶解することがなく、したがって、セラミックグリーンシートの厚さがきわめて薄い場合においても、セラミックグリーンシートにピンホールやクラックが発生することを確実に防止することが可能になる。
- [0019] 本発明において、好ましくは、 $MW_L$ 、 $MW_H$  および  $X$  が、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  が 15.5 万ないし 20.5 万となるように選ばれる。
- [0020] 本発明において、バインダとして、セラミックグリーンシートに含まれるブチラール系樹脂の重合度が 1000 以上であることが好ましい。
- [0021] 本発明において、バインダとして、ブチラール系樹脂のブチラール化度が 64 モル % 以上、78 モル % 以下であることが好ましい。
- [0022] 本発明の好ましい実施態様においては、前記電極層の形成に先立って、あるいは、前記電極層を形成し、乾燥した後に、さらに、前記セラミックグリーンシート上に、重量平均分子量  $MW_L$  のエチルセルロースと、重量平均分子量  $MW_H$  のエチルセルロースとを、 $X : (1-X)$  の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$  および  $X$  は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  が 11 万ないし 18 万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-

ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含む誘電体ペーストを、前記電極層のパターンと相補的なパターンで、印刷して、スペーサ層が形成される。

[0023] 本発明の好ましい実施態様によれば、セラミックグリーンシート上に、電極層のパターンと相補的なパターンで、スペーサ層が形成されるから、電極層の表面と、電極層が形成されていないセラミックグリーンシートの表面との間に、段差が形成されることを防止することができ、したがって、それぞれが、セラミックグリーンシートと電極層を含む多数の積層体ユニットを積層して、作製された積層セラミックコンデンサなどの積層電子部品が変形を起こすことを効果的に防止することが可能になるとともに、デラミネーションの発生を効果的に防止することが可能になる。

[0024] さらに、スペーサ層を形成するための誘電体ペーストに含まれる溶剤として、これまで用いられて来たターピネオールとケロシンの混合溶剤、ジヒドロターピネオール、ターピネオールなどは、セラミックグリーンシートにバインダとして含まれているブチラール樹脂を溶解するため、セラミックグリーンシートが膨潤し、あるいは、部分的に溶解して、セラミックグリーンシートとスペーサ層との界面に空隙が生じたり、あるいは、スペーサ層の表面にひびや皺が生じ、積層体ユニットを積層し、焼成して作製された積層セラミックコンデンサ中に、ボイドが発生し、さらには、ひびや皺が生じたスペーサ層の部分が、積層体ユニットを積層して、積層体を作製する工程で、積層体内に異物として混入し、積層セラミックコンデンサの内部欠陥の原因になり、スペーサ層が欠落した部分にボイドが生じるという問題があったが、本発明の好ましい実施態様によれば、スペーサ層を形成するために用いる誘電体ペーストは、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$ の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$  および $X$ は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  が11万ないし18万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含んでおり、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエ



ーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる溶剤は、セラミックグリーンシートにバインダとして含まれているブチラール樹脂をほとんど溶解しないため、セラミックグリーンシートが膨潤し、あるいは、部分的に溶解して、セラミックグリーンシートとスペーサ層との界面に空隙が生じたり、あるいは、スペーサ層の表面にひびや皺が生じることを確実に防止することができ、したがって、セラミックグリーンシートと電極層を含む多数の積層体ユニットを積層して、作製された積層セラミックコンデンサなどの積層電子部品にボイドが発生することを、確実に防止することが可能になる。

[0025] さらに、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、X:(1-X)の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$ およびXは、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$ が11万ないし18万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含む誘電体ペーストは、印刷に適した粘度を有しているから、セラミックグリーンシート上に、電極層のパターンと相補的なパターンで、誘電体ペーストを印刷して、所望のように、スペーサ層を形成することが可能になる。

[0026] また、きわめて薄いセラミックグリーンシートに、電極層用の導電体ペーストを印刷して、電極層を形成する場合には、導電体ペースト中の溶剤が、セラミックグリーンシートのバインダ成分を溶解または膨潤させ、その一方で、セラミックグリーンシート中に、導電体ペーストが染み込むという不具合があり、短絡不良の原因になるという問題があるため、電極層を、別の支持シート上に形成し、乾燥後に、接着層を介して、セラミックグリーンシートの表面に接着することが望ましいことが、本発明者らの研究によって判明しているが、このように、電極層を、別の支持シート上に形成する場合には、電極層から、支持シートを剥離しやすくするため、支持シートの表面に、セラミックグリーンシートと同じバインダを含む剥離層を形成し、剥離層上に、導電体ペーストを印刷して、電極層を形成することが好ましい。このように、セラミックグリーンシートと同様な

組成を有する剥離層上に、導電体ペーストを印刷して、電極層を形成する場合にも、剥離層が、ブチラール樹脂をバインダとして含み、導電体ペーストが、ターピネオールを溶剤として含んでいるときは、剥離層に含まれたバインダが、導電体ペーストに含まれた溶剤によって、溶解され、剥離層が膨潤し、あるいは、部分的に溶解し、剥離層と電極層との界面に空隙が生じたり、あるいは、電極層の表面にひびや皺が生じ、積層体ユニットを積層し、焼成して作製された積層セラミックコンデンサ中に、ボイドが発生するという問題があった。さらに、電極層の表面にひびや皺が生じると、その部分は、欠落しやすいため、積層体ユニットを積層して、積層体を作製する工程で、積層体内に異物として混入し、積層セラミックコンデンサの内部欠陥の原因になり、電極層が欠落した部分にボイドが生じるという問題があった。

- [0027] しかしながら、本発明によれば、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$ の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$  および $X$ は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  が14.5万ないし21.5万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含む導電体ペーストを用いて、電極層が形成され、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる溶剤は、セラミックグリーンシートに、バインダとして含まれるブチラール系樹脂をほとんど溶解しないから、セラミックグリーンシートと同じバインダを含む剥離層を形成し、剥離層上に、導電体ペーストを印刷して、電極層を形成する場合においても、剥離層が膨潤し、あるいは、部分的に溶解し、剥離層と電極層との界面に空隙が生じたり、あるいは、電極層の表面にひびや皺が生じることを効果的に防止することができ、積層セラミックコンデンサなどの積層セラミック電子部品に不具合が生じることを効果的に防止することが可能になる。

発明の効果

[0028] 本発明によれば、電極層に隣接する層に含まれているバインダを溶解することがなく、積層セラミック電子部品に、ショート不良が発生することを確実に防止することができ、しかも、印刷性に優れた導電体ペーストを提供することが可能になる。

[0029] また、本発明によれば、積層セラミック電子部品に、ショート不良が発生することを確実に防止することができ、所望のように、電極層を形成することができる積層セラミック電子部品用の積層体ユニットの製造方法を提供することが可能になる。

#### 発明を実施するための最良の形態

[0030] 本発明の好ましい実施態様においては、まず、ブチラール系樹脂をバインダとして含むセラミックグリーンシート用の誘電体ペーストが調製され、エクストルージョンコーターやワイヤーバーコーターなどを用いて、長尺状の支持シート上に塗布され、塗膜が形成される。

セラミックグリーンシート形成用の誘電体ペーストは、通常、誘電体材料(セラミック粉末)と、有機溶剤中にブチラール系樹脂を溶解させた有機ビヒクルを混練して、調製される。

[0031] ブチラール系樹脂の重合度は1000以上であることが好ましい。

[0032] また、ブチラール系樹脂のブチラール化度は、64モル%以上、78モル%以下であることが好ましい。

有機ビヒクルに用いられる有機溶剤は、とくに限定されるものではなく、ブチルカルビトール、アセトン、トルエン、酢酸エチルなどの有機溶剤が用いられる。

誘電体材料としては、複合酸化物や酸化物となる各種化合物、たとえば、炭酸塩、硝酸塩、水酸化物、有機金属化合物などから適宜選択され、これらを混合して、用いることができる。誘電体材料は、通常、平均粒子径が約0.1  $\mu\text{m}$ ないし約3.0  $\mu\text{m}$ 程度の粉末として用いられる。誘電体材料の粒径は、セラミックグリーンシートの厚さより小さいことが好ましい。

誘電体ペースト中の各成分の含有量は、とくに限定されるものではなく、たとえば、誘電体材料100重量部に対して、約2.5重量部ないし約10重量部のブチラール系樹脂と、約50重量部ないし約320重量部の溶剤を含むように、誘電体ペーストを調製することができる。

誘電体ペースト中には、必要に応じて、各種分散剤、可塑剤、帯電助剤、離型剤、ぬれ剤などの添加物が含有されていてもよい。誘電体ペースト中に、これらの添加物を添加する場合には、総含有量を、約10重量%以下にすることが望ましい。

[0033] 誘電体ペーストを塗布する支持シートとしては、たとえば、ポリエチレンテレフタレートフィルムなどが用いられ、剥離性を改善するために、その表面に、シリコン樹脂、アルキド樹脂などがコーティングされていてもよい。

[0034] 次いで、塗膜が、たとえば、約50℃ないし約100℃の温度で、約1分ないし約20分にわたって、乾燥され、支持シート上に、セラミックグリーンシートが形成される。

[0035] 乾燥後におけるセラミックグリーンシートの厚さは3  $\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、さらに好ましくは、1.5  $\mu\text{m}$ 以下である。

[0036] 次いで、長尺状の支持シートの表面に形成されたセラミックグリーンシート上に、電極層用の導電体ペーストが、スクリーン印刷機やグラビア印刷機などを用いて、所定のパターンで印刷され、乾燥されて、電極層が形成される。

[0037] 電極層は、約0.1  $\mu\text{m}$ ないし約5  $\mu\text{m}$ の厚さに形成されることが好ましく、より好ましくは、約0.1  $\mu\text{m}$ ないし約1.5  $\mu\text{m}$ である。

電極層用の導電体ペーストは、各種導電性金属や合金からなる導電体材料、焼成後に、各種導電性金属や合金からなる導電体材料となる各種酸化物、有機金属化合物、または、レジネートなどと、溶剤中にエチルセルロースを溶解させた有機ビヒクルとを混練して、調製される。

[0038] 本実施態様において、導電体ペーストは、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、X:(1-X)の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$ およびXは、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$ が14.5万ないし21.5万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含んでいる。

[0039] イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチル

アセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる溶剤は、セラミックグリーンシートにバインダとして含まれるブチラール系樹脂をほとんど溶解しないから、きわめて薄いセラミックグリーンシート上に、導電体ペーストを印刷して、電極層を形成する場合においても、導電体ペースト中に含まれた溶剤によって、セラミックグリーンシートに含まれているバインダが溶解され、セラミックグリーンシートが膨潤し、あるいは、部分的に溶解することを効果的に防止することができ、したがって、セラミックグリーンシートの厚さがきわめて薄い場合においても、セラミックグリーンシートにピンホールやクラックが発生することを効果的に防止することが可能になる。

[0040] さらに、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、X: (1-X)の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$ およびXは、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$ が14.5万ないし21.5万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含む導電体ペーストは、印刷に適した粘度を有しているから、スクリーン印刷機やグラビア印刷機などを用いて、所望のように、セラミックグリーンシート上に、所定のパターンで、電極層を形成することが可能になる。

[0041] 好ましくは、 $MW_L$ 、 $MW_H$ およびXが、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$ が15.5万ないし20.5万となるように選ばれる。

導電体ペーストを製造する際に用いる導電体材料としては、Ni、Ni合金あるいはこれらの混合物が、好ましく用いられる。導電体材料の形状は、とくに限定されるものではなく、球状でも、鱗片状でも、あるいは、これらの形状のものが混合されていてもよい。また、導電体材料の平均粒子径は、とくに限定されるものではないが、通常、約0.1  $\mu m$ ないし約2  $\mu m$ 、好ましくは、約0.2  $\mu m$ ないし約1  $\mu m$ の導電性材料が用いられる。

導電体ペーストは、導電体材料100重量部に対して、好ましくは、約2.5重量部ないし約20重量部のバインダを含んでいる。

溶剤の含有量は、導電体ペースト全体に対して、好ましくは、約20重量%ないし約55重量%である。

接着性を改善するために、導電体ペーストが、可塑剤を含んでいることが好ましい。導電体ペーストに含まれる可塑剤は、とくに限定されるものではなく、たとえば、フタル酸エステル、アジピン酸、リン酸エステル、グリコール類などを挙げることができる。導電体ペーストは、バインダ100重量部に対して、好ましくは、約10重量部ないし約300重量部、さらに好ましくは、約10重量部ないし約200重量部の可塑剤を含んでいる。可塑剤の添加量が多すぎると、電極層の強度が著しく低下する傾向があり、好ましくない。

導電体ペースト中には、必要に応じて、各種分散剤、副成分化合物などから選択される添加物が含有されていてもよい。

[0042] 本発明において、好ましくは、電極層の形成に先立って、あるいは、電極層を形成して、乾燥した後に、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$ の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$ および $X$ は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$ が11万ないし18万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含むスペーサ層用の誘電体ペーストが、セラミックグリーンシートの表面に、電極層のパターンと相補的なパターンで、スクリーン印刷機やグラビア印刷機などを用いて、印刷されて、スペーサ層が形成される。

[0043] このように、セラミックグリーンシートの表面に、電極層のパターンと相補的なパターンで、スペーサ層を形成することによって、電極層の表面と、電極層が形成されていないセラミックグリーンシートの表面との間に、段差が形成されることを防止することができ、それぞれが、セラミックグリーンシートと電極層を含む多数の積層体ユニットを積層して、作製された積層セラミックコンデンサなどの積層電子部品が変形を起こすことを効果的に防止することが可能になるとともに、デラミネーションの発生を効果的に防止することが可能になる。

[0044] また、上述のように、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる溶剤は、セラミックグリーンシートにバインダとして含まれるブチラール樹脂をほとんど溶解しないから、スペーサ層を形成するための誘電体ペーストに含まれる溶剤によって、セラミックグリーンシートが膨潤し、あるいは、部分的に溶解して、セラミックグリーンシートとスペーサ層との界面に空隙が生じたり、あるいは、スペーサ層の表面にひびや皺が生じることを確実に防止することが可能になる。

[0045] さらに、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、X: (1-X)の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$ およびXは、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$ が11万ないし18万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含むスペーサ層用の誘電体ペーストは、印刷に適した粘度を有しているから、スクリーン印刷機やグラビア印刷機などを用いて、所望のように、セラミックグリーンシート上に、電極層のパターンと相補的なパターンで、スペーサ層を形成することが可能になる。

本実施態様においては、スペーサ層用の誘電体ペーストは、異なるバインダおよび溶剤を用いる点を除き、セラミックグリーンシート用の誘電体ペーストと同様にして、調製される。

[0046] 次いで、電極層あるいは電極層およびスペーサ層が乾燥されて、支持シート上に、セラミックグリーンシートと、電極層あるいは電極層およびスペーサ層が積層された積層体ユニットが作製される。

[0047] 積層セラミックコンデンサを作製するにあたっては、積層体ユニットのセラミックグリーンシートから、支持シートが剥離され、所定のサイズに裁断されて、所定の数の積層体ユニットが、積層セラミックコンデンサの外層上に積層され、さらに、積層体ユニット上に、他方の外層が積層され、得られた積層体が、プレス成形され、所定のサイ

ズに裁断されて、多数のセラミックグリーンチップが作製される。

[0048] こうして作製されたセラミックグリーンチップは、還元ガス雰囲気下に置かれて、バインダが除去され、さらに、焼成される。

[0049] 次いで、焼成されたセラミックグリーンチップに、必要な外部電極などが取り付けられて、積層セラミックコンデンサが作製される。

[0050] 本実施態様によれば、バインダとして、ブチラール系樹脂を含むセラミックグリーンシート上に、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$ の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$ および $X$ は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$ が14.5万ないし21.5万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含む導電体ペーストを、所定のパターンで、印刷して、電極層を形成するように構成されており、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる溶剤は、セラミックグリーンシートにバインダとして含まれるブチラール系樹脂をほとんど溶解しないから、きわめて薄いセラミックグリーンシート上に、導電体ペーストを印刷して、電極層を形成する場合においても、導電体ペースト中に含まれた溶剤によって、セラミックグリーンシートに含まれているバインダが溶解され、セラミックグリーンシートが膨潤し、あるいは、部分的に溶解することを効果的に防止することができ、したがって、セラミックグリーンシートの厚さがきわめて薄い場合においても、セラミックグリーンシートにピンホールやクラックが発生することを効果的に防止して、積層体ユニットを積層して、作製された積層セラミックコンデンサに、ショート不良が生じることを効果的に防止することが可能になる。

[0051] さらに、本実施態様によれば、バインダとして、ブチラール系樹脂を含むセラミックグリーンシート上に、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$ の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$



$W_H$  および  $X$  は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  が 11 万ないし 18 万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含むスペーサ層用の誘電体ペーストを、電極層のパターンと相補的なパターンで、印刷して、スペーサ層を形成するように構成されており、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる溶剤は、セラミックグリーンシートにバインダとして含まれるブチラール系樹脂をほとんど溶解しないから、きわめて薄いセラミックグリーンシート上に、誘電体ペーストを印刷して、スペーサ層を形成する場合においても、誘電体ペーストに含まれた溶剤によって、セラミックグリーンシートに含まれているバインダが溶解されて、セラミックグリーンシートとスペーサ層との界面に空隙が生じたり、あるいは、スペーサ層の表面にひびや皺が生じることを確実に防止することができ、したがって、セラミックグリーンシートと電極層を含む多数の積層体ユニットを積層して、作製された積層セラミックコンデンサにボイドが発生することを確実に防止することが可能になるとともに、スペーサ層の表面に生成されたひびや皺の部分が、積層体ユニットを積層して、積層体を作製する工程で、欠落して、積層体内に異物として混入し、積層セラミックコンデンサに内部欠陥を生じさせることを確実に防止することが可能になる。

[0052] 本発明の別の好ましい実施態様においては、セラミックグリーンシートを形成するために用いた長尺状の支持シートとは別の第二の支持シートが用意され、長尺状の第二の支持シートの表面に、セラミックグリーンシートに含まれている誘電体材料と実質的に同一組成の誘電体材料の粒子を含み、セラミックグリーンシートに含まれているバインダと同じバインダを含む誘電体ペーストが、ワイヤーバーコーターなどと用いて、塗布され、乾燥されて、剥離層が形成される。

[0053] 第二の支持シートとしては、たとえば、ポリエチレンテレフタレートフィルムなどが用いられ、剥離性を改善するために、その表面に、シリコン樹脂、アルキド樹脂などがコ

ーティングされていてもよい。

- [0054] 剥離層の厚さは、電極層の厚さ以下であることが好ましく、好ましくは、電極層の厚さの約60%以下、さらに好ましくは、電極層の厚さの約30%以下である。
- [0055] 剥離層が乾燥された後、剥離層の表面上に、上述したのと同様にして、調製された電極層用の導電体ペーストが、スクリーン印刷機やグラビア印刷機などを用いて、所定のパターンで印刷され、乾燥されて、電極層が形成される。
- [0056] 電極層は、約 $0.1\mu\text{m}$ ないし約 $5\mu\text{m}$ の厚さに形成されることが好ましく、より好ましくは、約 $0.1\mu\text{m}$ ないし約 $1.5\mu\text{m}$ である。
- [0057] 本実施態様において、導電体ペーストは、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$ の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$  および $X$ は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  が14.5万ないし21.5万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含んでいる。
- [0058] イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる溶剤は、セラミックグリーンシートにバインダとして含まれるブチラール系樹脂をほとんど溶解しないから、セラミックグリーンシートと同じバインダを含む剥離層を形成し、剥離層上に、導電体ペーストを印刷して、電極層を形成する場合にも、剥離層が膨潤し、あるいは、部分的に溶解し、剥離層と電極層との界面に空隙が生じたり、あるいは、電極層の表面にひびや皺が生じることを効果的に防止することが可能になる。
- [0059] さらに、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$ の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$  および $X$ は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  が14.5万ないし21.5万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチ

ルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含む導電体ペーストは、印刷に適した粘度を有しているから、スクリーン印刷機やグラビア印刷機などを用いて、所望のように、剥離層上に、所定のパターンで、電極層を形成することが可能になる。

[0060] 好ましくは、 $MW_L$ 、 $MW_H$  および  $X$  が、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  が 15.5 万ないし 20.5 万となるように選ばれる。

[0061] 本発明において、好ましくは、電極層の形成に先立って、あるいは、電極層を形成して、乾燥した後に、重量平均分子量  $MW_L$  のエチルセルロースと、重量平均分子量  $MW_H$  のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$  の重量比で含むバインダ（ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$  および  $X$  は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  が 11 万ないし 18 万となるように選ばれる。）と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含み、上述したのと同様に、調製されたスペーサ層用の誘電体ペーストが、剥離層の表面に、電極層のパターンと相補的なパターンで、スクリーン印刷機やグラビア印刷機などを用いて、印刷されて、スペーサ層が形成される。

[0062] このように、剥離層の表面に、電極層のパターンと相補的なパターンで、スペーサ層を形成することによって、電極層の表面と、電極層が形成されていない剥離層の表面との間に、段差が形成されることを防止することができ、それぞれが、セラミックグリーンシートと電極層を含む多数の積層体ユニットを積層して、作製された積層セラミックコンデンサなどの積層電子部品が変形を起こすことを効果的に防止することが可能になるとともに、デラミネーションの発生を効果的に防止することが可能になる。

[0063] また、上述のように、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる溶剤は、セラミックグリーンシートにバインダとして含まれるブチラール系樹脂をほとんど溶解しないから、セラミックグリーンシートと同じバインダを含む

剥離層を形成し、剥離層上に、誘電体ペーストを印刷して、スペーサ層を形成する場合にも、剥離層が膨潤し、あるいは、部分的に溶解し、剥離層とスペーサ層との界面に空隙が生じたり、あるいは、スペーサ層の表面にひびや皺が生じることを効果的に防止することが可能になる。

[0064] さらに、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$ の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$ および $X$ は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$ が11万ないし18万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含む誘電体ペーストは、印刷に適した粘度を有しているから、スクリーン印刷機やグラビア印刷機などを用いて、所望のように、剥離層上に、電極層のパターンと相補的なパターンで、スペーサ層を形成することが可能になる。

[0065] さらに、長尺状の第三の支持シートが用意され、接着剤溶液が、バーコータ、エクストルージョンコータ、リバースコータ、ディップコーター、キスコーターなどによって、第三の支持シートの表面に塗布され、乾燥されて、接着層が形成される。

[0066] 好ましくは、接着剤溶液は、セラミックグリーンシートを形成するための誘電体ペーストに含まれるバインダと同系のバインダと、セラミックグリーンシートに含まれている誘電体材料の粒子と実質的に同一の組成を有し、その粒径が、接着層の厚さ以下の誘電体材料の粒子と、可塑剤と、帯電防止剤と、剥離剤とを含んでいる。

[0067] 接着層は、約 $0.3 \mu m$ 以下の厚さに形成されることが好ましく、より好ましくは、約 $0.02 \mu m$ ないし約 $0.3 \mu m$ 、さらに好ましくは、約 $0.02 \mu m$ ないし約 $0.2 \mu m$ の厚さを有するように形成される。

[0068] こうして、長尺状の第三の支持シート上に形成された接着層は、長尺状の第二の支持シート上に形成された電極層もしくは電極層およびスペーサ層または支持シート上に形成されたセラミックグリーンシートの表面に接着され、接着後、接着層から第三の支持シートが剥離されて、接着層が転写される。

[0069] 接着層が、電極層あるいは電極層およびスペーサ層の表面に転写された場合には

、長尺状の支持シートの表面に形成されたセラミックグリーンシートが、接着層の表面に接着され、接着後に、セラミックグリーンシートから支持シートが剥離されて、セラミックグリーンシートが接着層の表面に転写され、セラミックグリーンシートならびに電極層あるいは電極層およびスペーサ層を含む積層体ユニットが作成される。

[0070] こうして得られた積層体ユニットのセラミックグリーンシートの表面に、電極層あるいは電極層およびスペーサ層の表面に、接着層を転写したのと同様にして、接着層が転写され、その表面に、接着層が転写された積層体ユニットが、所定のサイズに裁断される。

[0071] 同様にして、その表面に、接着層が転写された所定の数の積層体ユニットが作製され、所定の数の積層体ユニットが積層されて積層体ブロックが作製される。

[0072] 積層体ブロックを作製するにあたっては、まず、積層体ユニットが、ポリエチレンテレフタレートなどによって形成された支持体上に、積層体ユニットの表面に転写された接着層が支持体に接するように位置決めされ、プレス機などによって、加圧されて、積層体ユニットが、接着層を介して、支持体上に接着される。

[0073] その後、第二の支持シートが剥離層から剥離され、支持体上に、積層体ユニットが積層される。

[0074] 次いで、支持体上に積層された積層体ユニットの剥離層の表面に、表面に形成された接着層が接するように、新たな積層体ユニットが位置決めされ、プレス機などによって、加圧されて、支持体上に積層された積層体ユニットの剥離層に、接着層を介して、新たな積層体ユニットが積層され、その後に、新たな積層体ユニットの剥離層から、第二の支持シートが剥離される。

[0075] 同様のプロセスを繰り返して、所定の数の積層体ユニットが積層された積層体ブロックが作製される。

[0076] 一方、接着層が、セラミックグリーンシートの表面に転写された場合には、第二の支持シート上に形成された電極層あるいは電極層およびスペーサ層が、接着層の表面に接着され、接着後に、剥離層から第二の支持シートが剥離されて、電極層あるいは電極層およびスペーサ層ならびに剥離層が接着層の表面に転写され、セラミックグリーンシートならびに電極層およびスペーサ層を含む積層体ユニットが作成される。

- [0077] こうして得られた積層体ユニットの剥離層の表面に、セラミックグリーンシートの表面に、接着層を転写したのと同様にして、接着層が転写され、その表面に、接着層が転写された積層体ユニットが、所定のサイズに裁断される。
- [0078] 同様にして、その表面に、接着層が転写された所定の数の積層体ユニットが作製され、所定の数の積層体ユニットが積層されて積層体ブロックが作製される。
- [0079] 積層体ブロックを作製するにあたっては、まず、積層体ユニットが、ポリエチレンテレフタレートなどによって形成された支持体上に、積層体ユニットの表面に転写された接着層が支持体に接するように位置決めされ、プレス機などによって、加圧されて、積層体ユニットが、接着層を介して、支持体上に接着される。
- [0080] その後、支持シートがセラミックグリーンシートから剥離され、支持体上に、積層体ユニットが積層される。
- [0081] 次いで、支持体上に積層された積層体ユニットのセラミックグリーンシートの表面に、表面に形成された接着層が接するように、新たな積層体ユニットが位置決めされ、プレス機などによって、加圧されて、支持体上に積層された積層体ユニットのセラミックグリーンシートに、接着層を介して、新たな積層体ユニットが積層され、その後に、新たな積層体ユニットのセラミックから、支持シートが剥離される。
- [0082] 同様のプロセスを繰り返して、所定の数の積層体ユニットが積層された積層体ブロックが作製される。
- [0083] こうして作製された所定の数の積層体ユニットを含む積層体ブロックは、積層セラミックコンデンサの外層上に積層され、さらに、積層体ブロック上に、他方の外層が積層され、得られた積層体が、プレス成形され、所定のサイズに裁断されて、多数のセラミックグリーンチップが作製される。
- [0084] こうして作製されたセラミックグリーンチップは、還元ガス雰囲気下に置かれて、バインダが除去され、さらに、焼成される。
- [0085] 次いで、焼成されたセラミックグリーンチップに、必要な外部電極などが取り付けられて、積層セラミックコンデンサが作製される。
- [0086] 本実施態様によれば、第二の支持シート上に形成された電極層およびスペーサ層が乾燥した後に、接着層を介して、セラミックグリーンシートの表面に接着するように

構成されているから、セラミックグリーンシートの表面に、導電体ペーストを印刷して、電極層を形成し、誘電体ペーストを印刷して、スペーサ層を形成する場合のように、導電体ペーストや誘電体ペーストがセラミックグリーンシート中に染み込むことがなく、所望のように、セラミックグリーンシートの表面に、電極層およびスペーサ層を形成することが可能になる。

[0087] また、本実施態様によれば、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$ の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$  および $X$ は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$ が14.5万ないし21.5万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含む導電体ペーストを用いて、電極層が形成され、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる溶剤は、セラミックグリーンシートに、バインダとして含まれるブチラール系樹脂をほとんど溶解しないから、セラミックグリーンシートと同じバインダを含む剥離層を形成し、剥離層上に、導電体ペーストを印刷して、電極層を形成する場合にも、剥離層が膨潤し、あるいは、部分的に溶解して、剥離層にピンホールやクラックが発生することを効果的に防止することができ、積層セラミックコンデンサに不具合が生じることを効果的に防止することが可能になる。

[0088] さらに、本実施態様によれば、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$ の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$  および $X$ は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$ が11万ないし18万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含む誘電体ペーストを用いて、スペーサ

層が形成され、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる溶剤は、セラミックグリーンシートに、バインダとして含まれるブチラール系樹脂をほとんど溶解しないから、セラミックグリーンシートと同じバインダを含む剥離層を形成し、剥離層上に、誘電体ペーストを印刷して、スペーサ層を形成する場合にも、剥離層が膨潤し、あるいは、部分的に溶解し、剥離層とスペーサ層との界面に空隙が生じたり、あるいは、スペーサ層の表面にひびや皺が生じることを効果的に防止することができ、したがって、セラミックグリーンシートと電極層を含む多数の積層体ユニットを積層して、作製された積層セラミックコンデンサにボイドが発生することを確実に防止することが可能になるとともに、スペーサ層の表面に生成されたひびや皺の部分が、積層体ユニットを積層して、積層体を作製する工程で、欠落して、積層体内に異物として混入し、積層セラミックコンデンサに内部欠陥を生じさせることを確実に防止することが可能になる。

[0089] また、本実施態様によれば、剥離層が膨潤し、あるいは、部分的に溶解することによって、剥離層と電極層およびスペーサ層との間に剥離強度あるいは剥離層と第二の支持シートとの間の剥離強度が変化し、積層体ユニットを作成する際に、不具合が生じることを効果的に防止することが可能になる。

[0090] 本発明の他の実施態様においては、接着層が、電極層あるいは電極層およびスペーサ層の表面に転写された場合に、長尺状の第二の支持シート上に、剥離層、電極層または電極層およびスペーサ層、接着層ならびにセラミックグリーンシートが積層されて、形成された積層体ユニットのセラミックグリーンシートの表面に、接着層が転写された後、積層体ユニットが裁断されることなく、接着層に、長尺状の支持シート上に、セラミックグリーンシート、接着層、電極層または電極層およびスペーサ層ならびに剥離層が積層されて、形成された積層体ユニットの剥離層が接着され、セラミックグリーンシートから支持シートが剥離されて、長尺状の第二の支持シート上に、2つの積層体ユニットが積層される。

[0091] 次いで、2つの積層体ユニットの表面に位置するセラミックグリーンシート上に、第三



の支持シート上に形成された接着層が転写され、さらに、接着層に、長尺状の支持シート上に、セラミックグリーンシート、接着層、電極層または電極層およびスペーサ層ならびに剥離層が積層されて、形成された積層体ユニットの剥離層が接着され、セラミックグリーンシートから支持シートが剥離される。

[0092] 同様のプロセスを繰り返して、所定の数の積層体ユニットが積層された積層体ユニットセットが作製され、さらに、積層体ユニットセットの表面に位置するセラミックグリーンシートの表面に、第三の支持シート上に形成された接着層が転写された後、所定のサイズに裁断されて、積層体ブロックが作製される。

[0093] 一方、接着層が、セラミックグリーンシートの表面に転写された場合には、長尺状の支持シート上に、セラミックグリーンシート、接着層、電極層または電極層およびスペーサ層ならびに剥離層が積層されて、形成された積層体ユニットの剥離層の表面に、接着層が転写された後、積層体ユニットが裁断されることなく、接着層に、長尺状の第二の支持シート上に、剥離層、電極層または電極層およびスペーサ層、接着層ならびにセラミックグリーンシートが積層されて、形成された積層体ユニットのセラミックグリーンシートが接着され、剥離層から第二の支持シートが剥離されて、長尺状の支持シート上に、2つの積層体ユニットが積層される。

[0094] 次いで、2つの積層体ユニットの表面に位置する剥離層上に、第三の支持シート上に形成された接着層が転写され、さらに、接着層に、長尺状の第二の支持シート上に、剥離層、電極層または電極層およびスペーサ層、接着層ならびにセラミックグリーンシートが積層されて、形成された積層体ユニットのセラミックグリーンシートが接着され、剥離層から第二の支持シートが剥離される。

[0095] 同様のプロセスを繰り返して、所定の数の積層体ユニットが積層された積層体ユニットセットが作製され、さらに、積層体ユニットセットの表面に位置する剥離層の表面に、第三の支持シート上に形成された接着層が転写された後、所定のサイズに裁断されて、積層体ブロックが作製される。

[0096] こうして作製された積層体ブロックを用いて、前記実施態様と同様にして、積層セラミックコンデンサが作製される。

[0097] 本実施態様によれば、長尺状の第二の支持シートあるいは支持シート上に、積層

体ユニットを次々に積層して、所定の数の積層体ユニットを含む積層体ユニットセットを作製し、その後に、積層体ユニットセットを所定のサイズに裁断して、積層体ブロックを作成しているから、所定のサイズに裁断された積層体ユニットを1つずつ、積層して、積層体ブロックを作製する場合に比して、積層体ブロックの製造効率を大幅に向上させることが可能になる。

[0098] 本発明のさらに他の実施態様においては、接着層が、電極層あるいは電極層およびスペーサ層の表面に転写された場合に、長尺状の第二の支持シート上に、剥離層、電極層または電極層およびスペーサ層、接着層ならびにセラミックグリーンシートが積層されて、形成された積層体ユニットのセラミックグリーンシートの表面に、接着層が転写された後、積層体ユニットが裁断されることなく、接着層に、第二の支持シート上に形成された電極層あるいは電極層およびスペーサ層が接着され、剥離層から第二の支持シートが剥離されて、電極層あるいは電極層およびスペーサ層ならびに剥離層が、接着層の表面に転写される。

[0099] 次いで、接着層の表面に転写された剥離層の表面に、第三の支持シート上に形成された接着層が転写され、支持シート上に形成されたセラミックグリーンシートが、接着層に接着され、セラミックグリーンシートから支持シートが剥離されて、セラミックグリーンシートが、接着層の表面に転写される。

[0100] さらに、接着層の表面に転写されたセラミックグリーンシートの表面に、第三の支持シート上に形成された接着層が転写され、第二の支持シート上に形成された電極層あるいは電極層およびスペーサ層が、接着層に接着され、剥離層から第二の支持シートが剥離されて、電極層あるいは電極層およびスペーサ層ならびに剥離層が、接着層の表面に転写される。

[0101] 同様のプロセスを繰り返して、所定の数の積層体ユニットが積層された積層体ユニットセットが作製され、さらに、積層体ユニットセットの表面に位置するセラミックグリーンシートの表面に、接着層が転写された後、所定のサイズに裁断されて、積層体ブロックが作製される。

[0102] 一方、接着層が、セラミックグリーンシートの表面に転写された場合には、長尺状の支持シート上に、セラミックグリーンシート、接着層、電極層または電極層およびスペ

一サ層ならびに剥離層が積層されて、形成された積層体ユニットの剥離層の表面に、接着層が転写された後、積層体ユニットが裁断されることなく、接着層に、支持シート上に形成されたセラミックグリーンシートが接着され、セラミックグリーンシートから支持シートが剥離されて、セラミックグリーンシートが、接着層の表面に転写される。

[0103] 次いで、接着層の表面に転写されたセラミックグリーンシートの表面に、第三の支持シート上に形成された接着層が転写され、第二の支持シート上に形成された電極層または電極層およびスペーサ層が、接着層に接着され、剥離層から第二の支持シートが剥離されて、電極層あるいは電極層およびスペーサ層ならびに剥離層が、接着層の表面に転写される。

[0104] さらに、接着層の表面に転写された剥離層の表面に、第三の支持シート上に形成された接着層が転写され、支持シートシート上に形成されたセラミックグリーンシートが、接着層に接着され、セラミックグリーンシートから支持シートが剥離されて、セラミックグリーンシートが、接着層の表面に転写される。

[0105] 同様のプロセスを繰り返して、所定の数の積層体ユニットが積層された積層体ユニットセットが作製され、さらに、積層体ユニットセットの表面に位置する剥離層の表面に、接着層が転写された後、所定のサイズに裁断されて、積層体ブロックが作製される。

[0106] こうして作製された積層体ブロックを用いて、前記実施態様と同様にして、積層セラミックコンデンサが作製される。

[0107] 本実施態様によれば、長尺状の第二の支持シートあるいは支持シート上に形成された積層体ユニットの表面上に、接着層の転写、電極層または電極層およびスペーサ層ならびに剥離層の転写、接着層の転写ならびにセラミックグリーンシートの転写を繰り返して、積層体ユニットを次々に積層して、所定の数の積層体ユニットを含む積層体ユニットセットを作製し、その後に、積層体ユニットセットを所定のサイズに裁断して、積層体ブロックを作成しているから、所定のサイズに裁断された積層体ユニットを1つずつ、積層して、積層体ブロックを作製する場合に比して、積層体ブロックの製造効率を大幅に向上させることが可能になる。

[0108] 以下、本発明の効果をより明瞭なものとするため、実施例および比較例を掲げる。

## 実施例

## [0109] 実施例1

セラミックグリーンシート用の誘電体ペーストの調製

1. 48重量部の $(\text{BaCa})\text{SiO}_3$ と、1. 01重量部の $\text{Y}_2\text{O}_3$ と、0. 72重量部の $\text{MgCO}_3$ と、0. 13重量部の $\text{MnO}$ と、0. 045重量部の $\text{V}_2\text{O}_5$ を混合して、添加物粉末を調製した。

[0110] こうして調製した添加物粉末100重量部に対して、72. 3重量部のエチルアルコールと、72. 3重量部のプロピルアルコールと、25. 8重量部のキシレンと、0. 93重量部のポリエチレングリコール系分散剤を混合して、スラリーを調製し、スラリー中の添加物を粉砕した。

[0111] スラリー中の添加物の粉砕にあたっては、11. 65gのスラリーと、450gの $\text{ZrO}_2$ ビーズ(直径2mm)を、250ccのポリエチレン容器内に充填し、周速45m/分で、ポリエチレン容器を回転させて、16時間にわたって、スラリー中の添加物を粉砕して、添加物スラリーを調製した。

[0112] 粉砕後の添加物のメディアン径は0. 1  $\mu\text{m}$ であった。

[0113] 次いで、15重量部のポリビニルブチラール(重合度1450、ブチラール化度69モル%)を、50℃で、42. 5重量部のエチルアルコールと42. 5重量部のプロピルアルコールに溶解して、有機ビヒクルの15%溶液を調製し、さらに、以下の組成を有するスラリーを、500ccのポリエチレン容器を用いて、20時間にわたって、混合し、誘電体ペーストを調製した。混合にあたって、ポリエチレン容器内に、330. 1gのスラリーと、900gの $\text{ZrO}_2$ ビーズ(直径2mm)を充填し、周速45m/分で、ポリエチレン容器を回転させた。

[0114]  $\text{BaTiO}_3$  粉末(堺化学工業株式会社製:商品名「BT-02」:粒径0. 2  $\mu\text{m}$ )

100重量部

添加物スラリー	11. 65重量部
エチルアルコール	35. 32重量部
プロピルアルコール	35. 32重量部
キシレン	16. 32重量部

フタル酸ベンジルブチル(可塑剤)	2. 61重量部
ミネラルスピリット	7. 3重量部
ポリエチレングリコール系分散剤	2. 36重量部
イミダゾリン系帯電助剤	0. 42重量部
有機ビヒクル	33. 74重量部
メチルエチルケトン	43. 81重量部
2-ブトキシエチルアルコール	43. 81重量部

ポリエチレングリコール系分散剤としては、ポリエチレングリコールを脂肪酸で変性した分散剤(HLB=5-6)を用いた。

[0115] セラミックグリーンシートの形成

得られた誘電体ペーストを、ダイコータを用いて、50m/分の塗布速度で、ポリエチレンテレフタレートフィルム上に塗布して、塗膜を生成し、80℃に保持された乾燥炉中で、得られた塗膜を乾燥して、1  $\mu$  mの厚さを有するセラミックグリーンシートを形成した。

[0116] 電極用の導電体ペーストの調製

1. 48重量部の(BaCa)SiO<sub>3</sub>と、1. 01重量部のY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>と、0. 72重量部のMgCO<sub>3</sub>と、0. 13重量部のMnOと、0. 045重量部のV<sub>2</sub>O<sub>5</sub>を混合して、添加物粉末を調製した。

[0117] こうして調製した添加物粉末100重量部に対して、150重量部のアセトンと、104. 3重量部のイソボニルアセテートと、1. 5重量部のポリエチレングリコール系分散剤を混合して、スラリーを調製し、アシザワ・ファインテック株式会社製粉砕機「LMZ0. 6」(商品名)を用いて、スラリー中の添加物を粉砕した。

[0118] スラリー中の添加物の粉砕にあたっては、ZrO<sub>2</sub>ビーズ(直径0. 1mm)を、ベッセル内に、ベッセル容量に対して、80%になるように充填し、周速14m/分で、ベッセルを回転させ、スラリーを、全スラリーがベッセルに滞留する時間が30分になるまで、ベッセルとスラリータンクとの間を循環させて、スラリー中の添加物を粉砕した。

[0119] 粉砕後の添加物のメディアン径は0. 1  $\mu$  mであった。

[0120] 次いで、エバポレータを用いて、アセトンを蒸発させて、スラリーから除去し、添加物

がターピネオールに分散された添加物ペーストを調製した。添加物ペースト中の不揮発成分濃度は49.3重量%であった。

[0121] 次いで、重量平均分子量( $MW_H$ )23万のエチルセルロースと重量平均分子量( $MW_L$ )13万のエチルセルロースを、75:25の重量比で含む8重量部のバインダ、すなわち、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  で定義される見かけの重量平均分子量が20.5万のエチルセルロース8重量部を、70°Cで、92重量部のイソボニルアセテートに溶解して、有機ビヒクルの8%溶液を調製し、さらに、以下の組成を有するスラリーを、ボールミルを用いて、16時間わたって、分散した。分散条件は、ミル中の $ZrO_2$  (直径2.0 mm)の充填量を30容積%、ミル中のスラリー量を60容積%とし、ボールミルの周速は45m/分とした。

[0122]	川鉄工業株式会社製のニッケル粉末(粒径0.2 $\mu m$ )	100重量部
	添加物ペースト	1.77重量部
	BaTiO <sub>3</sub> 粉末(堺化学工業株式会社製;粒径0.05 $\mu m$ )	
		19.14重量部
	有機ビヒクル	56.25重量部
	ポリエチレングリコール系分散剤	1.19重量部
	イソボニルアセテート	32.19重量部
	アセトン	56重量部

[0123] 次いで、エバポレータおよび加熱機構を備えた攪拌装置を用いて、こうして得られたスラリーから、アセトンを蒸発させて、混合物から除去し、導電体ペーストを得た。導電体ペースト中の導電体材料濃度は47重量%であった。

[0124] こうして調製された導電体ペーストの粘度を、HAAKE株式会社製円錐円盤粘度計を用いて、25°C、剪断速度8sec<sup>-1</sup>で測定するとともに、25°C、剪断速度50sec<sup>-1</sup>で測定した。

[0125] その結果、剪断速度8sec<sup>-1</sup>での粘度は19.4Ps・s、剪断速度50sec<sup>-1</sup>での粘度は10.4Ps・sであった。

[0126] 電極層の形成および積層体ユニットの作製  
 こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、セラミックグリーンシ

ート上に印刷し、90℃で、5分間あたり、乾燥して、1  $\mu$  mの厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0127] こうして形成した電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、0.124  $\mu$  mであり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。

[0128] セラミックグリーンチップの作製

上述のように、調製した誘電体ペーストを、ダイコータを用いて、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に塗布して、塗膜を形成し、塗膜を乾燥して、10  $\mu$  mの厚さを有するセラミックグリーンシートを形成した。

[0129] こうして作製した10  $\mu$  mの厚さを有するセラミックグリーンシートを、ポリエチレンテレフタレートフィルムから剥離して、裁断し、裁断した5枚のセラミックグリーンシートを積層して、50  $\mu$  mの厚さを有するカバー層を形成し、さらに、積層体ユニットを、ポリエチレンテレフタレートフィルムから剥離して、裁断し、裁断した50枚の積層体ユニットを、カバー層上に積層した。

[0130] 次いで、10  $\mu$  mの厚さを有するセラミックグリーンシートを、ポリエチレンテレフタレートフィルムから剥離して、裁断し、裁断した5枚のセラミックグリーンシートを、積層された積層体ユニット上に積層して、50  $\mu$  mの厚さを有する下部カバー層と、1  $\mu$  mの厚さを有するセラミックグリーンシートと1  $\mu$  mの厚さを有する電極層を含む50枚の積層体ユニットが積層された100  $\mu$  mの厚さを有する有効層と、50  $\mu$  mの厚さを有する上部カバー層とが積層された積層体を作製した。

[0131] 次いで、こうして得られた積層体を、70℃の温度条件下で、100MPaの圧力を加えて、プレス成形し、ダイシング加工機によって、所定のサイズに裁断し、セラミックグリーンチップを作製した。

[0132] 積層セラミックコンデンササンプルの作製

こうして作製されたセラミックグリーンチップを、空気中において、以下の条件で処理し、バインダを除去した。

[0133] 昇温速度:50℃/時間

保持温度:240℃

保持時間:8時間

[0134] バインダを除去した後、セラミックグリーンチップを、露点20℃に制御された窒素ガスと水素ガスの混合ガスの雰囲気下において、以下の条件で処理し、焼成した。混合ガス中の窒素ガスおよび水素ガスの含有量は95容積%および5容積%とした。

[0135] 昇温速度:300℃/時間

保持温度:1200℃

保持時間:2時間

冷却速度:300℃/時間

[0136] さらに、焼成したセラミックグリーンチップに、露点20℃に制御された窒素ガスの雰囲気下において、以下の条件で、アニール処理を施した。

[0137] 昇温速度:300℃/時間

保持温度:1000℃

保持時間:3時間

冷却速度:300℃/時間

[0138] こうして得られた焼結体の端面を、サンドブラストによって研磨した後、In-Ga合金を塗布して、端子電極を形成し、積層セラミックコンデンササンプルを作製した。

[0139] 同様にして、合計50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製した。

[0140] ショート率の測定

こうして作製した50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート不良を検査した。

[0141] 得られた抵抗値が100kΩ以下のものをショート不良とし、ショート不良が認められた積層セラミックコンデンササンプル数を求め、積層セラミックコンデンササンプルの総数に対する割合(%)を算出して、ショート率を測定した。

[0142] その結果、ショート率は12%で、実用上、ショート不良は問題にならないことがわかった。

[0143] 実施例2

導電体ペーストのバインダとして、重量平均分子量( $MW_H$ )23万のエチルセルロー



スと重量平均分子量( $MW_L$ )13万のエチルセルロースを、50:50の重量比で含むバインダ、すなわち、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  で定義される見かけの重量平均分子量が18万のエチルセルロースを用いた点を除き、実施例1と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、25℃、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0144] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は15.5Ps・s、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は8.5Ps・sであった。

[0145] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、1 $\mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0146] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、0.089 $\mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。

[0147] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は4%で、実用上、ショート不良は問題にならないことがわかった。

[0148] 実施例3

導電体ペーストのバインダとして、重量平均分子量( $MW_H$ )23万のエチルセルロースと重量平均分子量( $MW_L$ )13万のエチルセルロースを、25:75の重量比で含むバインダ、すなわち、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  で定義される見かけの重量平均分子量が15.5万のエチルセルロースを用いた点を除いて、実施例1と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、25℃、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0149] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は11.2Ps・s、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は6.8Ps・sであった。

[0150] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と

同様に、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\ \mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0151] 実施例1と同様に、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.065\ \mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。

[0152] さらに、実施例1と同様に、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は4%で、実用上、ショート不良は問題にならないことがわかった。

[0153] 実施例4

導電体ペーストを調製する際の溶剤として、イソボニルアセテートに代えて、ジヒドロターピニルメチルエーテルを用いた点を除き、実施例1と同様に、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、 $25^\circ\text{C}$ 、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、 $25^\circ\text{C}$ 、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0154] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $16.1\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $9.3\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。

[0155] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様に、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\ \mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0156] 実施例1と同様に、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.111\ \mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。

[0157] さらに、実施例1と同様に、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は12%で、実用上、ショート不良は問題にならないことがわかった。

[0158] 実施例5

導電体ペーストのバインダとして、重量平均分子量23万のエチルセルロースと重量平均分子量13万のエチルセルロースを、50:50の重量比で含むバインダを用いた点を除き、実施例4と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、25℃、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0159] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $12.3\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $7.3\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。

[0160] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの上に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0161] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.066\mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。

[0162] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は12%で、実用上、ショート不良は問題にならないことがわかった。

[0163] 実施例6

導電体ペーストのバインダとして、重量平均分子量23万のエチルセルロースと重量平均分子量13万のエチルセルロースを、25:75の重量比で含むバインダを用いた点を除き、実施例4と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、25℃、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0164] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $8.6\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $5.3\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。

[0165] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と

同様に、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\ \mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0166] 実施例1と同様に、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.068\ \mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。

[0167] さらに、実施例1と同様に、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は8%で、実用上、ショート不良は問題にならないことがわかった。

[0168] 実施例7

導電体ペーストを調製する際の溶剤として、イソボニルアセテートに代えて、ターピニルメチルエーテルを用いた点を除き、実施例1と同様に、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、 $25^{\circ}\text{C}$ 、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、 $25^{\circ}\text{C}$ 、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0169] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $15.6\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $9.0\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。

[0170] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様に、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\ \mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0171] 実施例1と同様に、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.071\ \mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。

[0172] さらに、実施例1と同様に、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は12%で、実用上、ショート不良は問題にならないことがわかった。

[0173] 実施例8

導電体ペーストのバインダとして、重量平均分子量23万のエチルセルロースと重量平均分子量13万のエチルセルロースを、50:50の重量比で含むバインダを用いた点を除き、実施例7と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、25℃、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0174] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $11.7\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $6.6\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。

[0175] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0176] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.068\mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。

[0177] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は14%で、実用上、ショート不良は問題にならないことがわかった。

[0178] 実施例9

導電体ペーストのバインダとして、重量平均分子量23万のエチルセルロースと重量平均分子量13万のエチルセルロースを、25:75の重量比で含むバインダを用いた点を除き、実施例7と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、25℃、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0179] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $8.3\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $4.78\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。

[0180] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と

同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\text{ }\mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0181] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.066\text{ }\mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。

[0182] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は6%で、実用上、ショート不良は問題にならないことがわかった。

[0183] 実施例10

導電体ペーストを調製する際の溶剤として、イソボニルアセテートに代えて、 $\alpha$ -ターピニルアセテートを用いた点を除き、実施例2と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、 $25^{\circ}\text{C}$ 、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、 $25^{\circ}\text{C}$ 、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0184] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $12.0\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $5.9\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。

[0185] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\text{ }\mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0186] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.061\text{ }\mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。

[0187] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は8%で、実用上、ショート不良は問題にならないことがわかった。

[0188] 実施例11

導電体ペーストを調製する際の溶剤として、イソボニルアセテートに代えて、I-ジヒドロカルビルアセテートを用いた点を除き、実施例2と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、25℃、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0189] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $11.5\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $6.6\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。

[0190] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0191] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.072\mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。

[0192] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は18%で、実用上、ショート不良は問題にならないことがわかった。

[0193] 実施例12

導電体ペーストを調製する際の溶剤として、イソボニルアセテートに代えて、I-メントンを用いた点を除き、実施例2と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、25℃、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0194] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $12.4\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $6.7\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。

[0195] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシート

と電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0196] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.061\ \mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。

[0197] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は6%で、実用上、ショート不良は問題にならないことがわかった。

[0198] 実施例13

導電体ペーストを調製する際の溶剤として、イソボニルアセテートに代えて、I-メンチルアセテートを用いた点を除き、実施例2と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、 $25^{\circ}\text{C}$ 、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、 $25^{\circ}\text{C}$ 、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0199] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $10.6\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $5.8\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。

[0200] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\ \mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0201] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.059\ \mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。

[0202] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は14%で、実用上、ショート不良は問題にならないことがわかった。

[0203] 実施例14

導電体ペーストを調製する際の溶剤として、イソボニルアセテートに代えて、I-ペリ



リルアセテートを用いた点を除き、実施例2と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度8sec<sup>-1</sup>で測定するとともに、25℃、剪断速度50sec<sup>-1</sup>で測定した。

[0204] その結果、剪断速度8sec<sup>-1</sup>での粘度は11.8Ps・sであり、剪断速度50sec<sup>-1</sup>での粘度は6.1Ps・sであった。

[0205] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、1μmの厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0206] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、0.069μmであり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。

[0207] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は12%で、実用上、ショート不良は問題にならないことがわかった。

[0208] 実施例15

導電体ペーストを調製する際の溶剤として、イソボニルアセテートに代えて、1-カルビルアセテートを用いた点を除き、実施例2と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度8sec<sup>-1</sup>で測定するとともに、25℃、剪断速度50sec<sup>-1</sup>で測定した。

[0209] その結果、剪断速度8sec<sup>-1</sup>での粘度は10.9Ps・sであり、剪断速度50sec<sup>-1</sup>での粘度は5.9Ps・sであった。

[0210] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、1μmの厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0211] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サー

フコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.059\mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。

- [0212] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は8%で、実用上、ショート不良は問題にならないことがわかった。

比較例

- [0213] 比較例1

導電体ペーストのバインダとして、重量平均分子量23万のエチルセルロースを用いた点を除き、実施例1と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、 $25^{\circ}\text{C}$ 、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、 $25^{\circ}\text{C}$ 、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

- [0214] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $23.2\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $12.1\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。

- [0215] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

- [0216] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.210\mu\text{m}$ であり、電極層の表面粗さが高く、表面平滑性の高い電極層を形成することができないことがわかった。

- [0217] これは、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での導電体ペーストの粘度が高すぎ、所望のように、導電体ペーストを印刷することができなかったことに起因するものと思われる。

- [0218] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は36%で、ショート率も高いことがわかった。

## [0219] 比較例2

導電体ペーストのバインダとして、重量平均分子量13万のエチルセルロースを用いた点を除き、実施例1と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、25℃、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0220] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $7.1\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $4.7\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。

[0221] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0222] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.071\mu\text{m}$ であり、電極層の表面平滑性は高かったが、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での導電体ペーストの粘度が低すぎて、流動化しやすかったため、スクリーン製版上から、導電体ペーストが染み出し、所望のパターンで、電極層を形成することができなかった。

## [0223] 比較例3

セラミックグリーンシートを形成するための誘電体ペーストのバインダとして、重合度が800で、ブチラール化度が69モル%のブチラール系樹脂を用いた点を除き、実施例1と同様にして、セラミックグリーンシート形成用の誘電体ペーストを調製し、セラミックグリーンシートを作製した。

さらに、実施例2と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、25℃、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0224] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $15.5\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $9.8\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。

[0225] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\mu\text{m}$ の厚さを有する電

極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0226] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.073\mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。

[0227] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は30%で、ショート率が高く、実用性がないことがわかった。

[0228] 比較例4

導電体ペーストのバインダとして、重量平均分子量23万のエチルセルロースを用いた点を除き、実施例4と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、 $25^{\circ}\text{C}$ 、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、 $25^{\circ}\text{C}$ 、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0229] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $20.3\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $11.3\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。

[0230] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0231] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.200\mu\text{m}$ であり、電極層の表面粗さが高く、表面平滑性の高い電極層を形成することができないことがわかった。

[0232] これは、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での導電体ペーストの粘度が高すぎ、所望のように、導電体ペーストを印刷することができなかったことに起因するものと思われる。

[0233] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定し

て、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は34%で、ショート率も高いことがわかった。

[0234] 比較例5

導電体ペーストのバインダとして、重量平均分子量13万のエチルセルロースを用いた点を除き、実施例4と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、25℃、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0235] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $5.3\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $3.2\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。

[0236] 次に、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0237] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.064\mu\text{m}$ であり、電極層の表面平滑性は高かったが、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での導電体ペーストの粘度が低すぎて、流動化しやすかったため、スクリーン製版上から、導電体ペーストが染み出し、所望のパターンで、電極層を形成することができなかった。

[0238] 比較例6

セラミックグリーンシートを形成するための誘電体ペーストのバインダとして、重合度が800で、ブチラール化度が69モル%のブチラール系樹脂を用いた点を除き、実施例1と同様にして、セラミックグリーンシート形成用の誘電体ペーストを調製し、セラミックグリーンシートを作製した。

さらに、実施例5と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、25℃、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0239] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $12.3\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $7.3\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。

- [0240] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\ \mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。
- [0241] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.078\ \mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。
- [0242] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は34%で、ショート率が高く、実用性がないことがわかった。
- [0243] 比較例7
- 導電体ペーストのバインダとして、重量平均分子量23万のエチルセルロースを用いた点を除き、実施例7と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、 $25^{\circ}\text{C}$ 、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、 $25^{\circ}\text{C}$ 、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。
- [0244] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $21.3\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $11.75\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。
- [0245] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\ \mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。
- [0246] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.192\ \mu\text{m}$ であり、電極層の表面粗さが高く、表面平滑性の高い電極層を形成することができないことがわかった。
- [0247] これは、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での導電体ペーストの粘度が高すぎ、所望のように、導電体ペーストを印刷することができなかったことに起因するものと思われる。

[0248] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は40%で、ショート率も高いことがわかった。

[0249] 比較例8

導電体ペーストのバインダとして、重量平均分子量13万のエチルセルロースを用いた点を除き、実施例7と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、25℃、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0250] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は5.3Ps・sであり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は3.0Ps・sであった。

[0251] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0252] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.071\mu\text{m}$ であり、電極層の表面平滑性は高かったが、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での導電体ペーストの粘度が低すぎて、流動化しやすかったため、スクリーン製版上から、導電体ペーストが染み出し、所望のパターンで、電極層を形成することができなかった。

[0253] 比較例9

セラミックグリーンシートを形成するための誘電体ペーストのバインダとして、重合度が800で、ブチラール化度が69モル%のブチラール系樹脂を用いた点を除き、実施例1と同様にして、セラミックグリーンシート形成用の誘電体ペーストを調製し、セラミックグリーンシートを作製した。

さらに、実施例8と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、25℃、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

- [0254] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $11.7\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $6.6\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。
- [0255] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。
- [0256] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.091\mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。
- [0257] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は30%で、ショート率が高く、実用性がないことがわかった。
- [0258] 比較例10  
導電体ペーストを調製する際の溶剤として、イソボニルアセテートに代えて、ターピネオールとケロシンの混合溶剤(混合比(質量比)50:50)を用いた点を除き、比較例2と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、 $25^{\circ}\text{C}$ 、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、 $25^{\circ}\text{C}$ 、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。
- [0259] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $10.7\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $6.7\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。
- [0260] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。
- [0261] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.129\mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。



- [0262] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は76%で、ショート率が著しく高く、実用性がないことがわかった。
- [0263] これは、導電体ペーストの溶剤であるターピネオールとケロシンの混合溶剤（混合比（質量比）50:50）が、セラミックグリーンシートのバインダであるポリビニルブチラールを溶解したためと考えられる。
- [0264] 比較例11
- 導電体ペーストを調製する際の溶剤として、イソボニルアセテートに代えて、ターピネオールを用いた点を除き、比較例2と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度8sec<sup>-1</sup>で測定するとともに、25℃、剪断速度50sec<sup>-1</sup>で測定した。
- [0265] その結果、剪断速度8sec<sup>-1</sup>での粘度は13.1Ps・sであり、剪断速度50sec<sup>-1</sup>での粘度は6.9Ps・sであった。
- [0266] 次いで、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、1μmの厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。
- [0267] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、0.192μmであり、電極層の表面粗さが高く、表面平滑性の高い電極層を形成することができないことがわかった。
- [0268] これは、導電体ペーストの溶剤であるターピネオールが、セラミックグリーンシートのバインダであるポリビニルブチラールを溶解したためと考えられる。
- [0269] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は88%で、ショート率が著しく高く、実用性がないことがわかった。

[0270] これは、導電体ペーストの溶剤であるターピネオールが、セラミックグリーンシートのバインダであるポリビニルブチラルを溶解したためと考えられる。

[0271] 比較例12

導電体ペーストを調製する際の溶剤として、イソボニルアセテートに代えて、ジヒドロターピネオールを用いた点を除き、比較例2と同様にして、導電体ペーストを調製し、こうして調製された導電体ペーストの粘度を、25℃、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ で測定するとともに、25℃、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ で測定した。

[0272] その結果、剪断速度 $8\text{sec}^{-1}$ での粘度は $13.4\text{Ps}\cdot\text{s}$ であり、剪断速度 $50\text{sec}^{-1}$ での粘度は $6.8\text{Ps}\cdot\text{s}$ であった。

[0273] 次に、こうして調製した導電体ペーストを、スクリーン印刷機を用いて、実施例1と同様にして、形成したセラミックグリーンシート上に印刷して、 $1\mu\text{m}$ の厚さを有する電極層を形成し、ポリエチレンテレフタレートフィルムの表面に、セラミックグリーンシートと電極層が積層された積層体ユニットを作製した。

[0274] 実施例1と同様にして、電極層の表面粗さ(Ra)を、株式会社小阪研究所製「サーフコーダー(SE-30D)」(商品名)を用いて、測定したところ、 $0.129\mu\text{m}$ であり、表面平滑性の高い電極層が形成されていることがわかった。

[0275] さらに、実施例1と同様にして、50個の積層セラミックコンデンササンプルを作製し、50個の積層セラミックコンデンササンプルの抵抗値を、マルチメータによって、測定して、積層セラミックコンデンササンプルのショート率を測定したところ、ショート率は56%で、ショート率が著しく高く、実用性がないことがわかった。

[0276] これは、導電体ペーストの溶剤であるジヒドロターピネオールが、セラミックグリーンシートのバインダであるポリビニルブチラルを溶解したためと考えられる。

[0277] 実施例1ないし15ならびに比較例10ないし12から、バインダとして、ポリビニルブチラル(重合度1450、ブチラル化度69モル%)を含む誘電体ペーストを用いて形成したセラミックグリーンシート上に、重量平均分子量13万のエチルセルロースをバインダとして含み、ターピネオールとケロシンの混合溶剤(混合比(質量比)50:50)を溶剤として含む導電体ペースト、重量平均分子量13万のエチルセルロースをバインダとして含み、ターピネオールを溶剤として含む導電体ペーストあるいは重量平

均分子量13万のエチルセルロースをバインダとして含み、ジヒドロターピネオールを溶剤として含む導電体ペーストを印刷して、積層体ユニットを作製し、50枚の積層体ユニットを積層して、積層セラミックコンデンサを作製した場合には、導電体ペーストの溶剤が、セラミックグリーンシートにバインダとして含まれたポリビニルブチラールを溶解するため、セラミックグリーンシートが膨潤し、あるいは、部分的に溶解して、セラミックグリーンシートにピンホールやクラックが発生し、その結果、積層セラミックコンデンサのショート率が著しく高くなるのに対して、バインダとして、ポリビニルブチラール(重合度1450、ブチラール化度69モル%)を含む誘電体ペーストを用いて形成したセラミックグリーンシート上に、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  で定義される見かけの重量平均分子量が15.5万ないし20.5万のエチルセルロースをバインダとして含み、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートあるいはI-カルビルアセテートを溶剤として含む導電体ペーストを印刷して、積層体ユニットを作製し、50枚の積層体ユニットを積層して、積層セラミックコンデンサを作製した場合には、導電体ペーストの溶剤が、セラミックグリーンシートにバインダとして含まれたポリビニルブチラールをほとんど溶解せず、したがって、セラミックグリーンシートが膨潤し、あるいは、部分的に溶解して、セラミックグリーンシートにピンホールやクラックが発生することが防止されるため、積層セラミックコンデンサのショート率を大幅に低下させることが可能になることが判明した。

- [0278] また、実施例1ないし15ならびに比較例1、4および7から、バインダとして、ポリビニルブチラール(重合度1450、ブチラール化度69モル%)を含む誘電体ペーストを用いて形成したセラミックグリーンシート上に、重量平均分子量23万のエチルセルロースをバインダとして含み、イソボニルアセテートを溶剤として含む導電体ペースト、重量平均分子量23万のエチルセルロースをバインダとして含み、ジヒドロターピニルメチルエーテルを溶剤として含む導電体ペーストあるいは重量平均分子量23万のエチルセルロースをバインダとして含み、ターピニルメチルエーテルを溶剤として含む導電体ペーストを印刷して、積層体ユニットを作製し、50枚の積層体ユニットを積層して、積層セラミックコンデンサを作製した場合には、導電体ペーストの粘度が高すぎ

、所望のように、導電体ペーストを印刷して、表面平滑性の高い電極層を形成することができなかつたため、積層セラミックコンデンサのショート率が著しく高くなるのに対し、バインダとして、ポリビニルブチラール(重合度1450、ブチラール化度69モル%)を含む誘電体ペーストを用いて形成したセラミックグリーンシート上に、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  で定義される見かけの重量平均分子量が15.5万ないし20.5万のエチルセルロースをバインダとして含み、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートあるいはI-カルビルアセテートを溶剤として含む導電体ペーストを印刷して、積層体ユニットを作製し、50枚の積層体ユニットを積層して、積層セラミックコンデンサを作製した場合には、導電体ペーストは印刷に適した粘度を有しており、スクリーン印刷機を用いて、所望のように、セラミックグリーンシート上に、所定のパターンで、電極層を形成することができ、ショート率の低い積層セラミックコンデンサを作成し得ることがわかつた。

- [0279] さらに、実施例1ないし15ならびに比較例2、5および8から、バインダとして、ポリビニルブチラール(重合度1450、ブチラール化度69モル%)を含む誘電体ペーストを用いて形成したセラミックグリーンシート上に、重量平均分子量13万のエチルセルロースをバインダとして含み、イソボニルアセテートを溶剤として含む導電体ペースト、重量平均分子量13万のエチルセルロースをバインダとして含み、ジヒドロターピニルメチルエーテルを溶剤として含む導電体ペーストあるいは重量平均分子量13万のエチルセルロースをバインダとして含み、ターピニルメチルエーテルを溶剤として含む導電体ペーストを印刷して、積層体ユニットを作製した場合には、導電体ペーストの粘度が低すぎて、流動化しやすかつたため、スクリーン製版上から、導電体ペーストが染み出し、所望のパターンで、電極層を形成することができなかつたのに対し、バインダとして、ポリビニルブチラール(重合度1450、ブチラール化度69モル%)を含む誘電体ペーストを用いて形成したセラミックグリーンシート上に、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  で定義される見かけの重量平均分子量が15.5万ないし20.5万のエチルセルロースをバインダとして含み、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビル

アセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートあるいはI-カルビルアセテートを溶剤として含む導電体ペーストを印刷して、積層体ユニットを作製し、50枚の積層体ユニットを積層して、積層セラミックコンデンサを作製した場合には、導電体ペーストは印刷に適した粘度を有しており、スクリーン印刷機を用いて、所望のように、セラミックグリーンシート上に、所定のパターンで、電極層を形成することができ、ショート率の低い積層セラミックコンデンサを作成し得ることが判明した。

[0280] また、実施例1ないし15ならびに比較例3、6および9から、バインダとして、ポリビニルブチラール(重合度800、ブチラール化度69モル%)を含む誘電体ペーストを用いて形成したセラミックグリーンシート上に、見かけの重量平均分子量が18万のエチルセルロースをバインダとして含み、イソボニルアセテートを溶剤として含む導電体ペースト、見かけの重量平均分子量が重量平均分子量18万のエチルセルロースをバインダとして含み、ジヒドロターピニルメチルエーテルを溶剤として含む導電体ペーストあるいは見かけの重量平均分子量が18万のエチルセルロースをバインダとして含み、ターピニルメチルエーテルを溶剤として含む導電体ペーストを印刷して、積層体ユニットを作製した場合には、積層セラミックコンデンサのショート率が著しく高くなるのに対して、バインダとして、ポリビニルブチラール(重合度1450、ブチラール化度69モル%)を含む誘電体ペーストを用いて形成したセラミックグリーンシート上に、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  で定義される見かけの重量平均分子量が15.5万ないし20.5万のエチルセルロースをバインダとして含み、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートあるいはI-カルビルアセテートを溶剤として含む導電体ペーストを印刷して、積層体ユニットを作製し、50枚の積層体ユニットを積層して、積層セラミックコンデンサを作製した場合には、導電体ペーストの溶剤が、セラミックグリーンシートにバインダとして含まれたポリビニルブチラールをほとんど溶解せず、したがって、セラミックグリーンシートが膨潤し、あるいは、部分的に溶解して、セラミックグリーンシートにピンホールやクラックが発生することが防止されるため、積層セラミックコンデンサのショート率を大幅に低下させることが可能になることがわかった。

- [0281]  $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  で定義される見かけの重量平均分子量が11万ないし18万のエチルセルロースを、バインダとして含み、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートあるいはI-カルビルアセテートを溶剤として含むスペーサ層用の誘電体ペーストを調製し、セラミックグリーンシート上に、電極層のパターンと相補的なパターンで印刷して、スペーサ層を形成した場合にも、同様の結果が得られた。
- [0282] 本発明は、以上の実施態様および実施例に限定されることなく、特許請求の範囲に記載された発明の範囲内で種々の変更が可能であり、それらも本発明の範囲内に包含されるものであることはいうまでもない。
- [0283] 本発明によれば、電極層に隣接する層に含まれているバインダを溶解することがなく、積層セラミック電子部品に、ショート不良が発生することを確実に防止することができ、しかも、印刷性に優れた導電体ペーストを提供することが可能になる。
- [0284] また、本発明によれば、積層セラミック電子部品に、ショート不良が発生することを確実に防止することができ、所望のように、電極層を形成することができる積層セラミック電子部品用の積層体ユニットの製造方法を提供することが可能になる。

## 請求の範囲

- [1] 重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$ の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$ および $X$ は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$ が14.5万ないし21.5万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含むことを特徴とする導電体ペースト。
- [2]  $MW_L$ 、 $MW_H$ および $X$ が、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$ が15.5万ないし20.5万となるように選ばれたことを特徴とする請求項1に記載の導電体ペースト。
- [3] バインダとして、ブチラール系樹脂を含むセラミックグリーンシート上に、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$ の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$ および $X$ は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$ が14.5万ないし21.5万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含む導電体ペーストを、所定のパターンで、印刷して、電極層を形成することを特徴とする積層セラミック電子部品用の積層体ユニットの製造方法。
- [4]  $MW_L$ 、 $MW_H$ および $X$ が、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$ が15.5万ないし20.5万となるように選ばれたことを特徴とする請求項3に記載の積層セラミック電子部品用の積層体ユニットの製造方法。
- [5] さらに、電極層の乾燥後に、前記セラミックグリーンシート上に、重量平均分子量 $MW_L$ のエチルセルロースと、重量平均分子量 $MW_H$ のエチルセルロースとを、 $X:(1-X)$ の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$ および $X$ は、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$ が11万ないし18万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートお

よびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含む誘電体ペーストを、前記電極層のパターンと相補的なパターンで、印刷して、スペーサ層を形成することを特徴とする請求項3または4に記載の積層セラミック電子部品用の積層体ユニットの製造方法。

- [6] 前記電極層の形成に先立って、前記セラミックグリーンシート上に、重量平均分子量  $MW_L$  のエチルセルロースと、重量平均分子量  $MW_H$  のエチルセルロースとを、X: (1-X) の重量比で含むバインダ(ここに、 $MW_L$ 、 $MW_H$  およびXは、 $X * MW_L + (1-X) * MW_H$  が11万ないし18万となるように選ばれる。)と、イソボニルアセテート、ジヒドロターピニルメチルエーテル、ターピニルメチルエーテル、 $\alpha$ -ターピニルアセテート、I-ジヒドロカルビルアセテート、I-メントン、I-メンチルアセテート、I-ペリリルアセテートおよびI-カルビルアセテートよりなる群から選ばれる少なくとも一種の溶剤を含む誘電体ペーストを、前記電極層のパターンと相補的なパターンで、印刷して、スペーサ層を形成することを特徴とする請求項3または4に記載の積層セラミック電子部品用の積層体ユニットの製造方法。
- [7] 前記ブチラール系樹脂の重合度が1000以上であることを特徴とする請求項3ないし6のいずれか1項に記載の積層セラミック電子部品用の積層体ユニットの製造方法。
- [8] 前記ブチラール系樹脂のブチラール化度が64モル%以上、78モル%以下であることを特徴とする請求項3ないし7のいずれか1項に記載の積層セラミック電子部品用の積層体ユニットの製造方法。



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/002882

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> H01B1/22, H01G4/12, H01G4/30

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> H01B1/22, H01G4/12, H01G4/30

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

WPI/L

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP 2003-249121 A (Murata Mfg. Co., Ltd.), 05 September, 2003 (05.09.03), Claims; Par. Nos. [0036], [0051] (Family: none)	1-6, 8 7
Y A	JP 2002-270456 A (Murata Mfg. Co., Ltd.), 20 September, 2002 (20.09.02), Claims; Par. Nos. [0013], [0026] (Family: none)	1-6, 8 7
Y A	JP 6-85466 A (Kyocera Corp.), 25 March, 1994 (25.03.94), Claims; Par. Nos. [0033] to [0050] (Family: none)	1-6, 8 7



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

## \* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T"

later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&amp;"

document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

22 March, 2005 (22.03.05)

Date of mailing of the international search report

05 April, 2005 (05.04.05)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/002882

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP 6-53654 A (Kyocera Corp.), 25 February, 1994 (25.02.94), Claims; Par. Nos. [0028] to [0045] (Family: none)	1-6, 8 7
Y A	JP 6-224556 A (Kyocera Corp.), 12 August, 1994 (12.08.94), Claims; Par. No. [0005] (Family: none)	1-6, 8 7
Y	JP 2003-17356 A (Kyocera Corp.), 17 January, 2003 (17.01.03), Par. Nos. [0053] to [0067]; Fig. 3 & US 2003/0016484 A1 Par. Nos. [0208] to [0220]; Fig. 8	5
Y	JP 10-275734 A (Kyocera Corp.), 13 October, 1998 (13.10.98), Par. No. [0042]; Figs. 7 to 8 (Family: none)	6

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01B1/22, H01G4/12, H01G4/30

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01B1/22, H01G4/12, H01G4/30

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2005年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2005年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 2003-249121 A (株式会社村田製作所) 2003. 09. 05 【特許請求の範囲】、【0036】、【0051】 (ファミリーなし)	1-6、8
A		7
Y	JP 2002-270456 A (株式会社村田製作所) 2002. 09. 20 【特許請求の範囲】、【0013】、【0026】 (ファミリーなし)	1-6、8
A		7

☒ C欄の続きにも文献が列举されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献  
 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

22. 03. 2005

国際調査報告の発送日

05.04.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)  
 前田 寛之

4X 2930

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y A	J P 6-85466 A (京セラ株式会社) 1994. 03. 25 【特許請求の範囲】、【0033】-【0050】 (ファミリーなし)	1-6、8 7
Y A	J P 6-53654 A (京セラ株式会社) 1994. 02. 25 【特許請求の範囲】、【0028】-【0045】 (ファミリーなし)	1-6、8 7
Y A	J P 6-224556 A (京セラ株式会社) 1994. 08. 12 【特許請求の範囲】、【0005】 (ファミリーなし)	1-6、8 7
Y	J P 2003-17356 A (京セラ株式会社) 2003. 01. 17 【0053】-【0067】、【図3】 & US 2003/0016484 A1 [0208]-[0220], FIG. 8	5
Y	J P 10-275734 A (京セラ株式会社) 1998. 10. 13 【0042】、【図7】-【図8】 (ファミリーなし)	6